

Japanese Patent Publication No. 61(1986)-250993

Laid-Open Date: November 8, 1986

Japanese Patent Application No. 60(1985)-92884

Filing date: 1985-4-30

Inventor(s): NUNOMURA KEIJI; SANO YOSHIO; UCHIUMI KAZUAKI

Applicant(s):: NIPPON ELECTRIC CO

IPC Classification: G09F9/30 ; H05B33/22

Title: EL ELEMENT

#### Concise Explanation

JP-A 61-250993 discloses that:

The invention is directed to an EL device comprising a light emitting layer and a high permittivity ceramic insulator layer sandwiched between a pair of electrodes, or an EL device comprising a high permittivity ceramic insulator layer, a light emitting layer and a thin-film insulator layer sandwiched between a pair of electrodes. A thin-film insulator layer intervenes between the high permittivity ceramic insulator layer and the light emitting layer.

FIG. 1 illustrates the basic structure of an EL device according to the invention. The device includes a substrate 11, an electrode 12, a high permittivity ceramic insulator layer 13, an intervening thin-film insulator layer 17, a light emitting layer 14, a second thin-film insulator layer 15, and a transparent electrode 16. That is, the structure is arrived at by adding the intervening thin-film insulator layer to the EL device structure using a high permittivity ceramic insulator layer shown in FIG. 4. The present invention is characterized in that an intervening layer is formed between the high permittivity ceramic insulator layer and the light emitting layer while the remaining components of the EL device need not be just as illustrated in FIG. 1. For example, the so-called one side insulating structure in which the second thin-film insulator layer 15 is eliminated is acceptable as well as the structure in which the high permittivity ceramic layer is made thicker and the substrate 11 is eliminated. The intervening thin-film insulator layer is an insulator thin film deposited by such techniques as sputtering, vacuum evaporation and plasma CVD. It need not necessarily be transparent, and a colored thin film may be used for improving contrast. Use may generally be made of stable oxides such as  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_5$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SiO}$ ,  $\text{Sm}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{BaTiO}_3$  and  $\text{SrTiO}_3$ , insulating nitrides such as

$\text{Si}_3\text{N}_4$ , and fluorides such as  $\text{CaF}_2$ . The intervening layer need not be so thick and a thickness of about 0.02 to 0.2  $\mu\text{m}$  is appropriate. A thicker intervening layer causes a voltage drop, which requires to increase the drive voltage.

In Example, by RF magnetron sputtering, a  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  film was deposited to a thickness of 0.05  $\mu\text{m}$  as the intervening thin-film insulator layer 17 shown in FIG. 1.

The provision of the intervening thin-film insulator layer minimizes the luminance decline. The advantages of the intervening layer which have been demonstrated for the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  in Example remain equivalent when  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_5$ ,  $\text{SiN}$  and the like are used.

⑬ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭61-250993

① Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 昭和61年(1986)11月8日

H 05 B 33/22  
G 09 F 9/307254-3K  
6810-5C

審査請求 未請求 発明の数 1 (全5頁)

⑤ 発明の名称 EL素子

⑥ 特 願 昭60-92884

⑦ 出 願 昭60(1985)4月30日

⑧ 発 明 者 布 村 恵 史 東京都港区芝5丁目33番1号 日本電気株式会社内  
 ⑧ 発 明 者 佐 野 興 志 雄 東京都港区芝5丁目33番1号 日本電気株式会社内  
 ⑧ 発 明 者 内 海 和 明 東京都港区芝5丁目33番1号 日本電気株式会社内  
 ⑨ 出 願 人 日本電気株式会社 東京都港区芝5丁目33番1号  
 ⑩ 代 理 人 弁理士 内 原 晋

## 明 細 書

## 1. 発明の名称 EL素子

## 2. 特許請求の範囲

2枚の電極間にEL発光層と高誘電率セラミック絶縁体層が挟持されたEL素子、あるいは2枚の電極間に高誘電率セラミック絶縁体層、EL発光層、薄膜絶縁体層が積層挟持されたEL素子において、前記高誘電率セラミック絶縁体層とEL発光層の間に薄膜の絶縁体層を介在させてなることを特徴とするEL素子。

## 3. 発明の詳細な説明

## (発明の技術分野)

本発明は発光表示装置や面光源として利用されるEL(エレクトロルミネセンス)素子に関するものである。

## (従来技術とその問題点)

発光体 質に電圧を印加することにより発光を

呈する、所謂、エレクトロルミネセンスが発見されて以来、面光源や表示装置への応用を目的として多くの研究開発が行なわれてきた。EL素子の構成も種々のものが提案検討されてきたが、薄膜のEL発光層を両側から絶縁体薄膜で挟み込んだ交流駆動の薄膜EL素子が発光特性、安定性に優れ情報端末用のディスプレイ等として実用に供されている。第3図にこの代表的な2重絶縁型薄膜EL素子の基本構造を示す。(エス・アイ・ディ・74・ダイジェスト・オブ・テクニカル・ペーパーズ・84頁, SID74 digest of technical papers)。ガラス基板31上にITOやネサ膜等の透明電極32、薄膜第1絶縁体層33、 $ZnS:Mn$ や $ZnS:TbF_3$ 、薄膜等の発光層34、更にその上に薄膜第2絶縁体層35、 $Al$ 薄膜等の背面電極36からなる多層薄膜構造を有している。第1及び第2絶縁体層は $Y_2O_3$ 、 $Ta_2O_5$ 、 $Al_2O_3$ 、 $Si_3N_4$ 、 $BaTiO_3$ 、 $SrTiO_3$ 等の0.2 $\mu$ ～1 $\mu$ 程度の厚さの透明誘電体薄膜でありスパッタリングや真空蒸着等により形成されている。この薄膜絶縁体層は高電圧の印

## 特開昭61-250993 (2)

加による過大な電流が発光層内を流れることを防止し、破壊を防ぐと共に湿気や有害なイオンの汚染から発光層を保護し信頼性を向上させるばかりではなく、素子の発光輝度や発光効率の向上をもたらす役割を担っている。しかしながら、このような素子構成においても実用上多くの問題がある。即ち表示装置や面光源への用途では相当広い面積にわたって素子の絶縁破壊の核となる欠陥を皆無にすることが非常に困難であり初期の電圧印加により素子破壊を生じるために製造の歩止りが低いことである。また、素子を発光させるに必要な駆動電圧は絶縁体層にも分割印加されるために高くならざるを得ず、駆動回路も高コストなものになる欠点がある。

これらの従来の薄膜EL素子の欠点を低減するために絶縁体層として薄膜絶縁体層の替わりに粉末原料を焼成した高誘電率のセラミック層を採用したEL素子を検討してきた。この型のEL素子の例を第4図に示す。基板41上に電極42、高誘電率セラミック絶縁体層43、薄膜発光層44、

薄膜第2絶縁体層45、透明電極46からなる基本構造を有している。なお薄膜第2絶縁体層45は必ずしもなくてもよい。このような構造のEL素子は積層セラミック技術や厚膜技術と薄膜技術の併用により製造することができる。ここで高誘電率セラミック絶縁体層として $\text{BaTiO}_3$ 系やpbを含む複合ペロブスカイト系の材料を使用することにより数1000から20000以上の比誘電率が実現される。従って、このセラミック絶縁体層の厚さを $10\mu\text{m}$ 以上の厚さにしても、従来の薄膜絶縁体層を採用した場合と同等以上の大容量の絶縁体層とすることができる。またこのように厚い層厚では絶縁耐圧が非常に高く、EL素子とした場合も実用的な印加電圧では絶縁破壊による素子破壊を皆無にすることができる。更に、このセラミック絶縁体層の容量が大きいため駆動電圧の容量分割分が減少し有効に発光層に電圧印加されるために駆動電圧の低電圧化を図ることもできる。以上のように高誘電率セラミック層をEL素子の絶縁体層として採用することにより歩止りや駆動

電圧の大幅な改善が実現される。しかしこのような素子を長時間発光させたところ輝度の低下があり実用上の問題となっている。

## (発明の目的)

本発明の目的は上述したように高誘電率セラミック層を絶縁体層としたEL素子の長所を損うことなく、輝度低下を防止したEL素子を提供することにある。

## (発明の構成とその詳細な説明)

本発明によれば2枚の電極間に発光層と高誘電率セラミック絶縁体層が挟持されたEL素子、あるいは2枚の電極間に高誘電率セラミック絶縁体層、発光層、薄膜絶縁体層が積層挟持されてなるEL素子において、前記高誘電率セラミック絶縁体層と発光層の間に薄膜の絶縁体層を介在させることを特徴とするEL素子が得られる。

本発明のEL素子の基本構造を第1図に示す。基板11上に電極12、高誘電率セラミック絶縁体層13、薄膜絶縁体介在層17、発光層14、薄膜第2絶縁体層15、透明電極16から成る

れる。要するに、第4図に示した高誘電率セラミック層を使用したEL素子構造に薄膜絶縁体介在層を挿入したものである。なお、本発明は高誘電率セラミック層と発光層の間に介在層を設けることを特徴とするものであり、EL素子の他の構成部分は第1図に示した通りである必要はない。例えば薄膜の第2絶縁体層15を排除した、所謂、片絶縁構造としてもよく、また高誘電率セラミック層を厚めにして基板11を排除した構造でもよい。また薄膜絶縁体介在層はスパッタ法や真空蒸着法、プラズマCVD法等の手段で成膜される絶縁体薄膜であり、かならずしも透明である必要はなく、コントラストを向上させるために着色された薄膜でもよい。一般的には $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{SiO}$ 、 $\text{Sm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{BaTiO}_3$ 、 $\text{SrTiO}_3$ 等の安定な酸化や $\text{Si}_3\text{N}_4$ 等の絶縁体窒化物や $\text{CaF}_2$ 等フッ化物等を使用することができる。また、この介在層の厚さはあまり厚くする必要はなく $0.02 \sim 0.2\mu\text{m}$ 程度が適当である。厚くした場合は介在層での電圧低下があり駆動電圧を高くする必要

## 特開昭61-250993 (3)

がある。また非常に薄くした場合はEL素子の輝度低下を十分防止することができない。なを、高誘電率セラミック層を絶縁体層としたEL素子が長時間の使用により輝度低下をきたす原因は不明であるが、有害なイオンがセラミック層から発光層や発光層との界面に拡散するためと思われる。本発明の薄膜絶縁体介在層の採用により、この有害イオンの拡散が防止されるものと思われる。また、介在層の厚さを特に0.1 $\mu$ m程度以下にした場合は介在層を挿入してもほとんど駆動電圧を高くする必要はなく、かえって若干の輝度向上が図られる場合もあった。

## (実施例)

第1図に示す断面構造を有するEL素子を作成した。製造の各工程は次の通りである。

アルミナとホウケイ酸鉛ガラスからなる粉末にバインダー混合し、泥とした後キャストニング成膜により厚さ0.7 $\mu$ mのセラミック基体となるグリーンシートを作成した。このセラミック生シート上にスクリーン印刷によりAgが85原子、パー

セント、Pbが15原子パーセントからなるAg-Pdペーストを0.55ミリ巾、ピッチ1.1ミリのストライプ状のパターンに形成し電極12とした。低湿焼成用のPbを含む複合ペロブスカイト材料として $Pb(Fe_{0.5}/_2W_{0.5}/_2)_{0.9}(Fe_{0.5}/_2Nb_{0.5}/_2)_{0.1}O_3$ の予焼粉末にバインダー混合、キャストニング成膜を行ない40 $\mu$ m厚さの高誘電率セラミック絶縁体層13用のグリーンシートを作成した。このグリーンシートを前述の電極12パターンが印刷された基体用のグリーンシート上に積層圧着し、端部の不用部分を切断したのち950℃で焼成し積層セラミック構造体を作成した。この焼成により約10%の収縮があったがそりの発生はなかった。次に高周波マグネトロンスパッタにより $Ta_2O_5$ 膜を0.05 $\mu$ mの厚さに成膜し薄膜絶縁体介在層17とした。

次にZnSとMnの共蒸着法によりZnS:Mnを0.3 $\mu$ mの厚さに真空蒸着した。特性の改善のためにAr中で550℃、2時間の熱処理を行なった。この後、再び高周波マグネトロンスパッタ法により

$Ta_2O_5$ 薄膜を0.3 $\mu$ mの厚さに成膜し薄膜第2絶縁体層15とした。更に、スパッタ法により、ITO膜を0.3 $\mu$ mの厚さに高周波マグネトロンスパッタにより成膜した。この膜、レジストによりあらかじめ前記Ag-Pd厚膜ストライプ電極と直交する配置でパターン化しておき、リフトオフ法で前記ITO膜をストライプ状にし透明電極16とした。

このようにして作成したEL素子に交流パルス電圧を印加したところ50Vから発光を開始し、80V、200Hzで約200cd/m<sup>2</sup>の低電圧で高輝度を得た。セラミック層が暗褐色であり、コントラストの高い発光表示ができた。また、150Vの過大な電圧を印加しても絶縁破壊による素子破壊は皆無であった。

この素子を乾燥窒素雰囲気中で200Hz、80Vで長時間発光させた場合の輝度変化を第2図に示す。1000時間の点灯でもほとんど輝度低下は見られなかった。なを、第2図に薄膜絶縁体介在層を排除した従来のEL素子の長時間点灯試験の結果をも比較のために示す。試験条件は同一である。

この素子では100時間程度の駆動で相当の輝度低下があり、その後も徐々に輝度低下しつづける傾向を示した。以上のように薄膜絶縁体介在層の採用により輝度低下は著しく少なくなった。このように介在層の効果は $Ta_2O_5$ 以外に $Al_2O_3$ 、 $Y_2O_3$ 、SiN等でもほぼ同であった。またZnS:Mn以外に絶縁発光のZnS:TbP、や赤色発光のZnS:SmP、等を発光層とした場合でも薄膜絶縁体介在層の効果は同様であり本発明のEL素子構造の有効性が示された。

## (発明の効果)

以上説明したように本発明のEL素子は低電圧駆動、高輝度発光、高コントラストであり、絶縁破壊による素子破壊がなく歩止りも高い高誘電セラミック絶縁体層を採用したEL素子の利点を損なうことなく輝度特性の長期安定化をもたらすものであり工業的価値は大である。

## 4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明のEL素子の断面構造図である。

## 特開昭61-250993 (4)

第2図は本実施のEL素子と従来品の発光輝度特性の時間変化を示したものである。第3図は一般的なEL素子である2重絶縁型薄膜EL素子の断面構造図であり、第4図は高誘電率セラミック絶縁体層を採用したEL素子の断面構造図である。

11, 41—基板、12, 42—電極、13, 43—高誘電率セラミック絶縁体層、14, 34, 44—発光層、15, 35, 45—薄膜第2絶縁体層、16, 32, 46—透明電極、17—薄膜絶縁体介在層、31—ガラス基板、33—薄膜第1絶縁体層、36—背面電極。

特許人 内原 晋

図 1

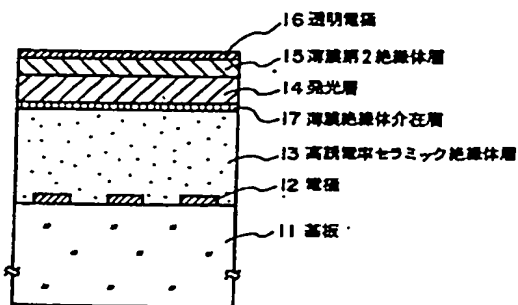


図 2

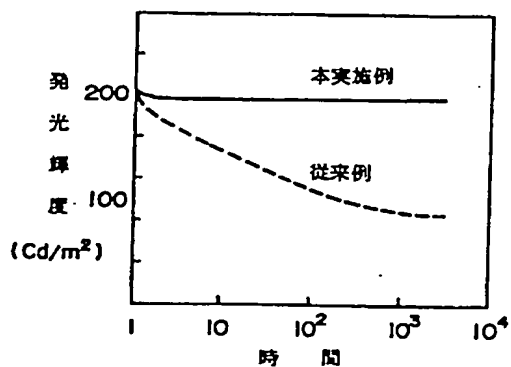
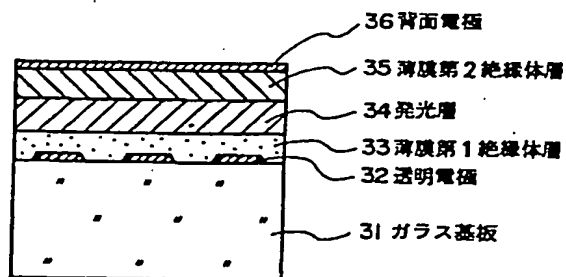


図 3



特開昭61-250993 (5)

才 4 図

